



TITLE:

ドハース・ファンアルフェン効果
とフェルミ面(強相関伝導系の物理
若手夏の学校,講義ノート)

AUTHOR(S):

木村, 憲彰

CITATION:

木村, 憲彰. ドハース・ファンアルフェン効果とフェルミ面(強相関伝導系の物理 若手夏の学校,講義ノート). 物性研究 1996, 65(4): 455-470

ISSUE DATE:

1996-01-20

URL:

<http://hdl.handle.net/2433/95649>

RIGHT:

ドハース・ファンアルフェン効果とフェルミ面

阪大理学部 木村憲彰

1 はじめに

伝導電子が大きな役割をしている強相関系において、フェルミ面研究という視点から伝導電子の性質をみるということは極めて重要である。金属のフェルミ面を実験的にとらえるにはドハース・ファンアルフェン効果 (de Haas-van Alphen effect 略してdHvA効果) が最も有効な手段である。dHvA効果はフェルミ面の形状を明らかにすることができるだけでなく、各フェルミ面のサイクロトロン有効質量やg因子、散乱緩和時間に関係した物理量であるディングル温度などを求めることができる。はじめにこのdHvA効果の原理について説明し、重い電子系の典型物質を例にして、dHvA効果からなにが明らかになったか、あるいは、なにを明らかにできるのかを述べた後、現在の問題について議論する。

2 dHvA効果の原理

簡単のために自由電子のフェルミ面を考える。結晶中に閉じこめられている自由電子のエネルギー固有値 E はよく知られた式

$$E = \frac{\hbar^2}{2m} (k_x^2 + k_y^2 + k_z^2) \quad (1)$$

で表される値をとり、低いエネルギーからフェルミ統計にしたがってフェルミエネルギーまで準位をしめる。 (k_x, k_y, k_z) は波数ベクトルである。この電子の一番外側の等エネルギー面はフェルミ面と呼ばれ、基底状態ではこれより上のエネルギーを持つ電子は存在しない。フェルミエネルギーにおける波数を k_F とすれば自由電子のフェルミ面は波数空間で半径 k_F の球面を形作る。磁場 H が z 軸方向に印加されると電子は角周波数 ω_c でサイクロトロン運動を始める。そのときのエネルギーは

$$E = \hbar\omega_c \left(n + \frac{1}{2} \right) + \frac{(\hbar k_z)^2}{2m^*} \quad (2)$$

となり、ランダウ準位と呼ばれるとびとびのエネルギー準位しか許されなくなる。立体的に書くと図1の様に円筒状になるが、ここでは図2の様に一次元的なエネルギー準位で説明することにする。磁場を増加させていくと準位間の間隔が広がるために一番外側の準位は順次フェルミエネルギーの外に追い出され、電子はその都度下の準位に再配列される。トータルの電子のエネルギーは図3にあるように磁場に対して (正確には磁場の逆数に対して) 振動する。dHvA効果はこのエネルギーの振動が磁化として観測される現象である。

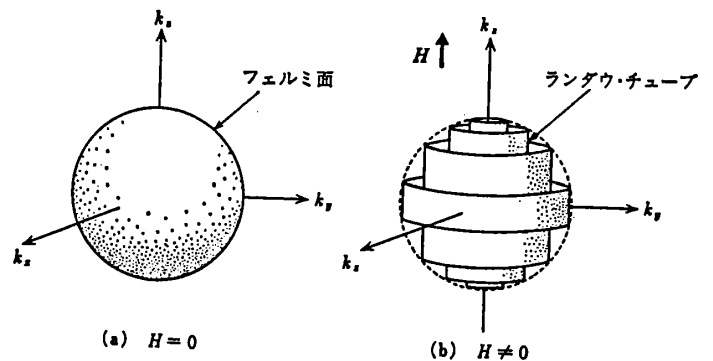


図1 z 軸方向に磁場がかかったときの自由電子のフェルミ面

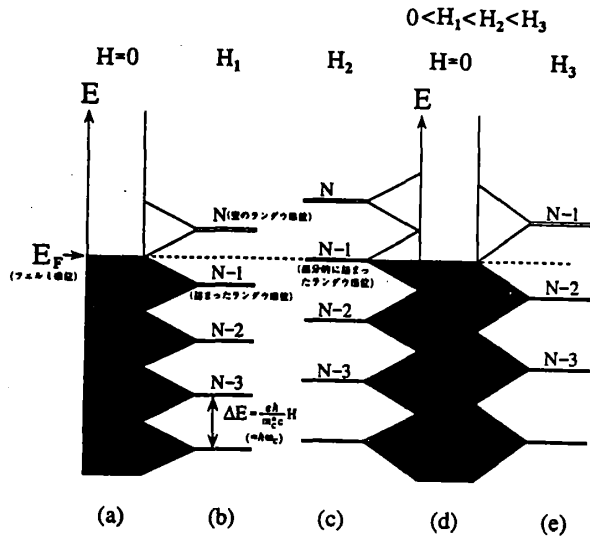


図2 ランダウ準位の模式図[1]

$H=0$ で準連続的だったエネルギー(a)は磁場によって束ねられ、一番外側のランダウ準位は(b)→(c)→(e)でフェルミエネルギーの外側に掃き出される。このとき $N-1$ 番目にいた電子は下の準位に再配列される。

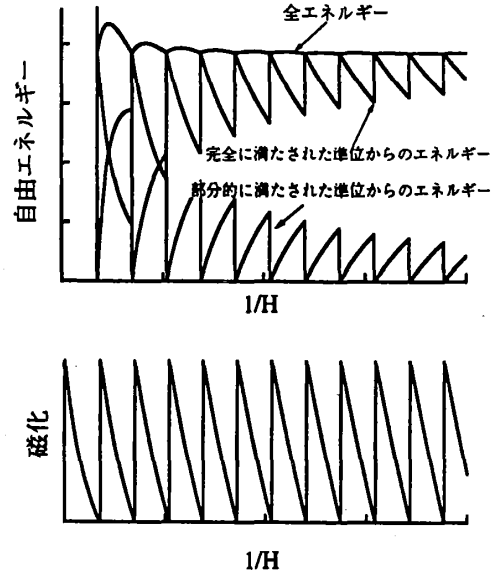


図3 ランダウ準位が磁場の増加によってフェルミ面をよぎるとき自由エネルギーと磁化の変化(2次元系でのシミュレーション)

磁化 M_{osc} の表式はリフシツツ・コゼビッチの式と呼ばれ以下のようにまとめることができる[2-4].

$$M_{osc} = \sum_r A_r \sin \left(\frac{2\pi r F}{H} + \beta \right) \quad (3.a)$$

$$A_r \propto \frac{(-1)^r}{r^{3/2}} H^{1/2} \left| \frac{\partial^2 S}{\partial k_H^2} \right|^{-1/2} R_T R_D R_S \quad (3.b)$$

$$R_T = \frac{\lambda r m_c^* T / H}{\sinh(\lambda r m_c^* T / H)} \quad (3.c)$$

$$R_D = \exp(-\lambda r m_c^* T_D / H) \quad (3.d)$$

$$R_S = \cos(\pi g r m_c^* / 2m_0) \quad (3.e)$$

$$\lambda = 2\pi^2 c k_B / e \hbar \quad (3.f)$$

ここで r は振動の高調波成分を表す。 β は位相因子で各フェルミ面ごとに異なる値を持つ。 T は温度, g は g 因子, c は光速, k_B はボルツマン定数, e は電子の電荷, m_0 は電子の静止質量である。最初の式の \sin 項が磁化の振動を与える項である。振動数 F はフェルミ面を磁場に垂直な平面で切った断面積の極値(極値断面積)と比例関係にあり、以下の式で表される。

$$\begin{aligned} F &= \frac{\hbar c}{2\pi e} S \\ &= 1.05 \times 10^{-8} [\text{Oe}/\text{cm}^2] \cdot S \end{aligned} \quad (4)$$

極値断面積とは球体であれば図4の部分であり、例えばひょうたん型のフェルミ面であれば極値は3つ存在することになり、dHvA効果では3つの振動が混ざって観測される。

振動振幅Aに含まれる R_T は温度によって振幅が指数関数的に小さくなることを示している。これは有限温度ではフェルミ面あるいはランダウ準位

に $k_B T$ だけのぼけが生じるためと考えると良い。 R_D は不純物による減衰項でディングル項と呼ばれている。 T_D はディングル温度と呼ばれ、

$$T_D = \frac{\hbar}{2\pi k_B} \tau^{-1} \quad (5)$$

$$= 1.22 \times 10^{-12} [\text{K} \cdot \text{sec}] \cdot \tau^{-1}$$

のように定義され電子の散乱緩和時間 τ に逆比例している。したがってこの項は電子の散乱緩和時間が短くなるほど振幅が落ち込むことを示している。 R_S はスピン項でランダウ準位のゼーマン分裂を考慮したことによって現れる項である。

一般的にdHvA効果の検出条件は以下の様になる。(1) ランダウ準位間の間隔 $\hbar\omega_c$ が温度によるぼけ $k_B T$ よりも大きくななければならない(強磁場, 極低温)。(2) サイクロトロン運動が不純物, 格子欠陥によって散乱を受ける前に一回以上しなければならない。つまり $\omega_c \tau / 2\pi > 1$ 。すなわち十分大きな散乱緩和時間が必要となる(純良単結晶)。

(3) 磁場のふらつきがdHvA振動の間隔よりも小さくなくてはならない(磁場の均一度)。

振幅Aにはまた $|\partial^2 S / \partial k_H^2|^{-1/2}$ という項があるがこれは曲率因子で、曲率が大きいほど振動が小さくなることを示している。つまりフェルミ面がごつごつしているとフェルミ面がはっきり見えなくなってしまうのである。この曲率因子がしばしばdHvA効果によるフェルミ面解析を難しくしている要因になっている。

3 dHvA効果の例

3.1 フェルミ面の形状

磁場をいろいろな方向にかけてdHvA効果の振動周波数を測定すればフェルミ面の形がわかる。少々おおざっぱなたとえだが、影絵を思いおこしてもらえればイメージがわきやすいだろう。いろいろな方向から光を当ててやれば影だけでも物体の形はある程度推定できるのと考え方は同じである。フェルミ面の場合は決まった角度範囲だけ磁場をかけてや

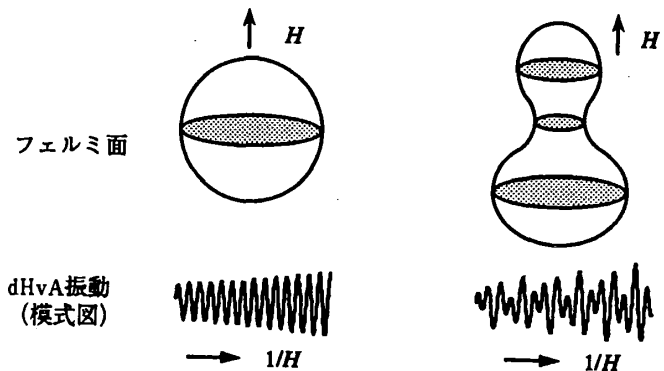


図4 (a)球状, (b)ひょうたん型フェルミ面の断面積の極値 (■の部分)
(a)は一つの振動しかないが(b)は三つの振動が混ざって観測される。

ればブリルアンゾーンの対称性からその形を推定できることになる。例えば、立方晶なら $\langle 100 \rangle$ から $\langle 110 \rangle$ ， $\langle 110 \rangle$ から $\langle 111 \rangle$ ， $\langle 111 \rangle$ から $\langle 100 \rangle$ を調べれば良いことになる。なお当然のことながら対称性の低い結晶ほど測定する角度範囲は広がる。またフェルミ面の体積はキャリア数であるからフェルミ面の形状からキャリアを直接求めることもできる。

典型的なフェルミ面とdHvA効果の振動数の角度変化の関係について図5に示しておこう。球状のフェルミ面であれば全ての角度範囲で振動数は一定である。回転楕円体（ラグビーボール型）であれば図5(b)のように回転の軸方向に磁場がかかったときに最小となり，軸に垂直にかかったときに最大となる。これらの例のように単純な形状に対しては実験からだけでもある程度決定できるが，複雑なものに対してはバンド計算との比較によって相補的に決定するのが普通である。

重い電子系において，f電子が局在しているのか遍歴しているのかという問題は極めて基本的かつ本質的な問題である。dHvA効果はこの問題に対して，非常に重要な情報を与えることができる。つまり，f電子が遍歴して伝導電子となっていればdHvA効果によってそのことをフェルミ面として観測することができるのである。f電子が遍歴としたバンド計算によって求めたフェルミ面がdHvA効果によって観測されたフェルミ面と一致していればf電子は遍歴しているといえる。また，f電子を持たないLa化合物のフェルミ面と比較してf電子が遍歴しているかどうかを確認することができる。ここではフェルミ面の決定の具体例としてf電子が局在しているCeSbと遍歴しているCeSn₃を取り上げる。

LaSb及びCeSbはともにNaCl型の結晶構造を持つ半金属である。図6にLaSbのdHvA振動数の角度依存性を示す[5]。実線は相対論的APW法で計算したバンド計算の結果である。バンド計算とdHvA効

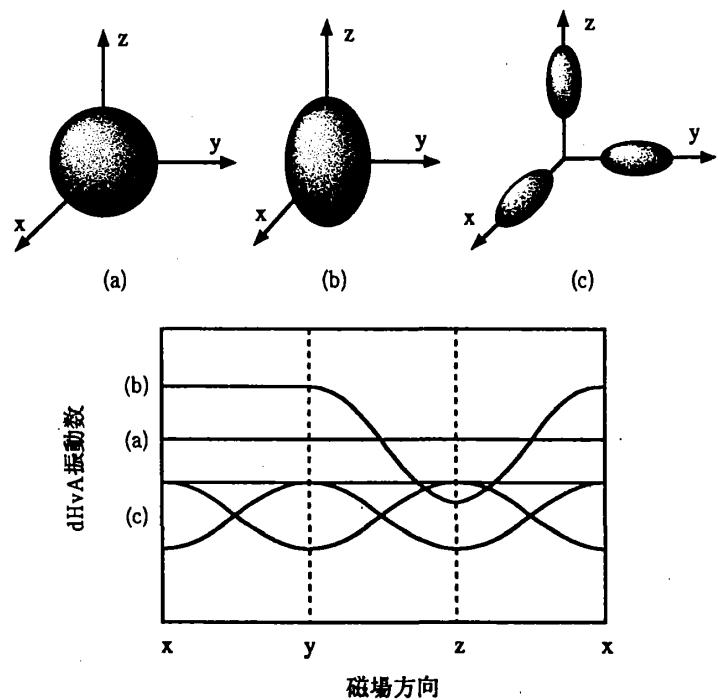


図5 典型的なフェルミ面のdHvA振動数の角度変化

- (a)球状フェルミ面
- (b)回転楕円体（中心にある場合）
- (c)回転楕円体（各軸方向にある場合）

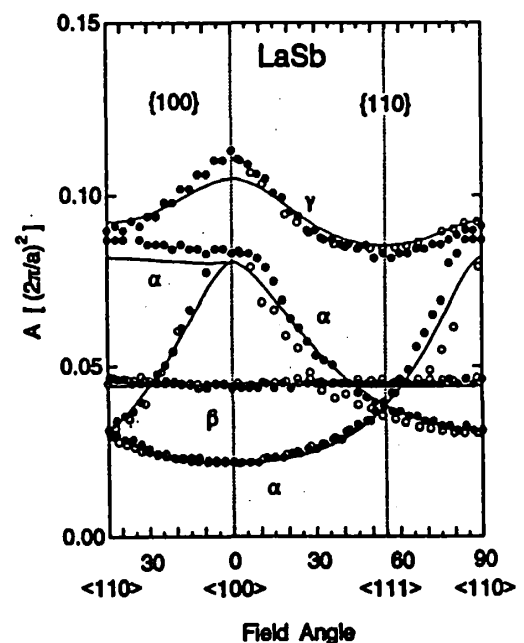


図6 LaSbの極値断面積（dHvA振動数）の角度依存性[5]。実線はバンド計算

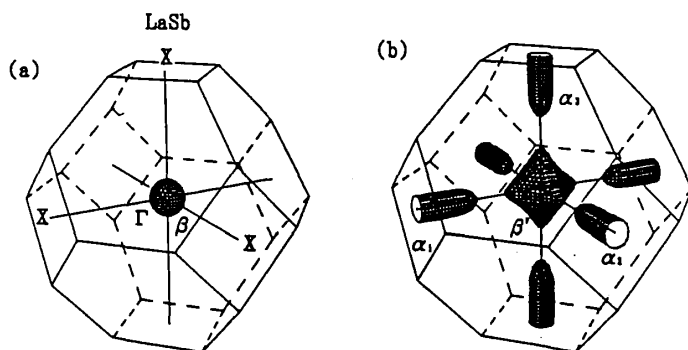


図7 LaSbのバンド計算によるフェルミ面[6]

果の結果は見事に一致している。原理のところでも述べたようにこの図からは球状フェルミ面と回転楕円体のフェルミ面が存在することが予想できる。実際フェルミ面は図7のようになる[6]。CeSbは低温で多くの磁気秩序相が存在するが、強磁性相(F)におけるdHvA効果の結果は図8にあるように実線で示したp-f混成モデルによるバンド計算[7]とよく一致している。図6と図8を比較してもわかるようにフェルミ面の形状からはLaSbとCeSbではほとんど差がない。なおCeSbでは強磁性のために、伝導電子の上向きスピンと下向きスピンに対応してフェルミ面が2つに分裂している。LaSbとCeSbのフェルミ面がほぼ同じということはf電子は伝導電子となっておらず、局在していることを意味している。

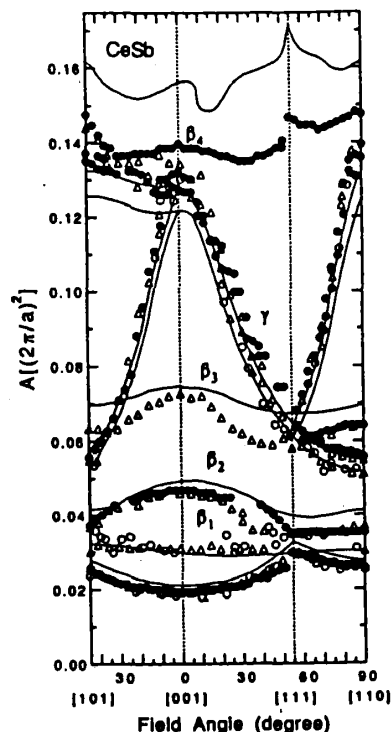
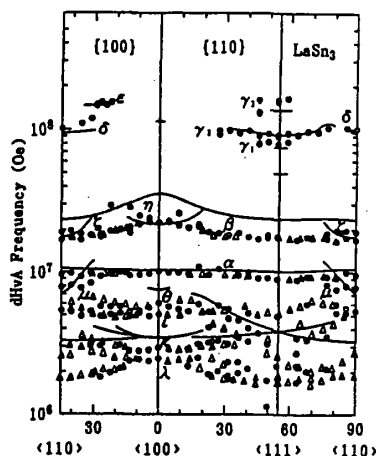
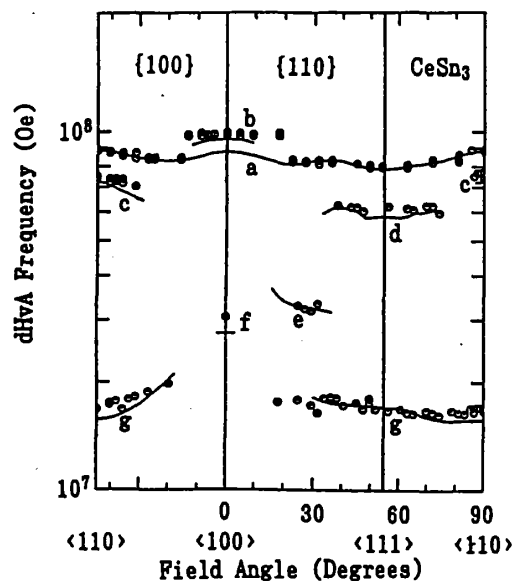
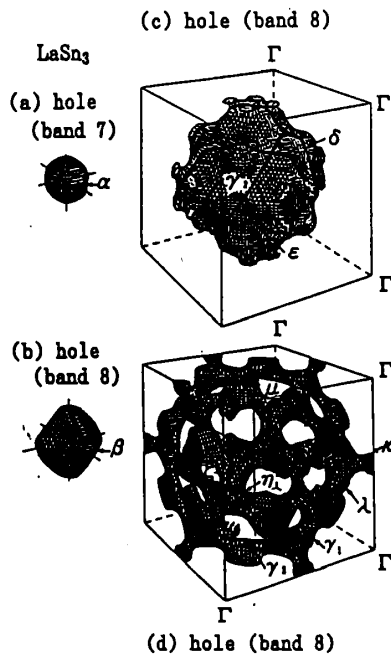
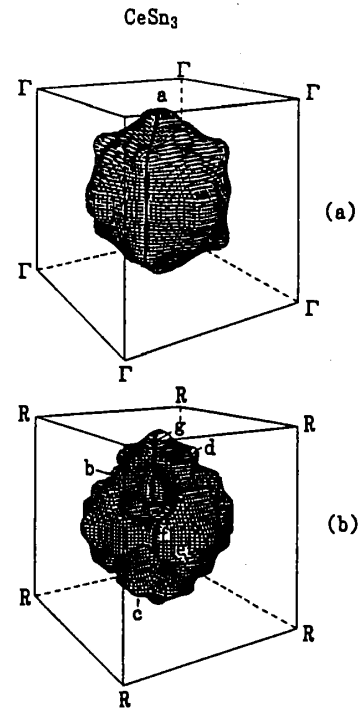


図8 CeSbの極値断面積 (dHvA振動数) の角度依存性[5]。実線はバンド計算[7]

次に立方晶のCeSn₃について紹介する。dHvA振動数の角度依存性をLaSn₃とCeSn₃について図9と図10に示すとおり、明らかに両者に違いがあることがわかる[8-9]。図中の実線はバンド計算 (相対論的APW法) による結果である。CeSn₃では4f電子を完全に遍歴と

図9 LaSn₃のdHvA振動数の角度依存性[8]図10 CeSn₃のdHvA振動数の角度依存性[9]

図11 LaSn₃のフェルミ面[10]図12 CeSn₃のフェルミ面[11]

して計算している[10,11]. 図11と図12の, バンド計算から求めたフェルミ面の図の中の太線はそれぞれ角度依存性の図にその対応が示してある. dHvAの結果とバンド計算は非常によく一致している. Laが3価, Snが4価とするとLaSn₃の価数は15となり, 低いエネルギーの七つのバンドは完全に占有され, 8番目のバンドが半分だけ埋まる. したがって図11に示したフェルミ面は第8バンド(ホール面)である. 一方CeSn₃の場合は第9バンドにもフェルミ面が存在(電子面)し, 電子と正孔が同数の金属であることがわかる. つまりCeは4価と考えることができ, f電子は遍歴していることがわかる. ちなみに電子と正孔が同数ということは電子面とホール面の体積が等しいということを意味する[13].

表1 フェルミ面が調べられた物質[13-15]

結晶構造	物質	R, X	結晶構造	物質	X
単純立方晶	RB ₆	La, Ce, Pr, Nd	単純立方晶	UB ₁₂	
	RAg	La, Ce		UX ₃	Rh, Ir, Ge
	RRh ₂	La, Ce		USb	
	RIn ₃	La, Ce, Pr, Nd, Sm, Gd		U ₃ P ₄	
	RSn ₃	La, Ce		U ₃ As ₄	
体心立方晶	RSb	La, Ce, Pr, Sm, Gd	六方晶	UC	
	RBi	La, Ce		UX ₃	Pd, Pt
	RAs	Ce, Yb		UPd ₂ Al ₃	
	CeP			UGe ₂	
六方晶	RAI ₂	Y, La, Ce			
	RGa ₂	La, Ce, Sm, Yb			
正方晶	RRu ₂ Si ₂	Y, La, Ce			
	RRu ₂ Ge ₂	La, Ce			
斜方晶	RNi	La, Ce, Pr			
	RCu ₂	Y, Ce, Pr, Sm			
	RCu ₆	La, Ce, Pr, Nd, Sm			

この節の最後として今までフェルミ面が調べられた物質を表1にまとめておく．Rは希土類元素，Xは遷移元素である[13-15]．

3.2 サイクロトロン有効質量

重い電子系では電子の有効質量が重要な物理量である．dHvA効果では，電子のサイクロトロン有効質量を，温度を変えてdHvA信号の振幅を測定することによって決定することができる．具体的には(3.c)式から逐次近似法によって求めるが，簡単な近似を行えば $\log(A/T)$ を温度 T に対してプロットすれば直線にのり，その直線の傾きからサイクロトロン有効質量を決定することがわかる．このことからわかるように重い電子ほど傾きは大きくなる．つまり温度による振幅の減衰は重い電子ほど厳しくdHvA信号の検出は困難になる．dHvA効果から求められるサイクロトロン有効質量は個々のフェルミ面に対して決定できることから，f電子が伝導電子にどれだけ影響しているかを個々のフェルミ面について調べることができる．

サイクロトロン有効質量の決定の一例として， CeRu_2Si_2 を取り上げてみよう． CeRu_2Si_2 の最も大きなサイクロトロン有効質量を持つフェルミ面として ψ ブランチがある（具体的なフェルミ面の形は図17を参照のこと）．dHvA振動の振幅の大きさの温度依存性は図13にあるように温度の増加とともに振幅は小さくなっていく[16]．ここでのdHvA効果の測定は最も一般的な磁場変調法という方法を用いているため，変調磁場による試料の発熱によって低温側での振幅の増加が抑えられていることに注意しなければならない．したがって ψ ブランチのサイクロトロン有効質量決定には，変調磁場の周波数を変えて測定し，周波数ゼロの極限での値を採用している．この様にして求めた ψ ブランチのサイクロトロン有効質量は $120m_0$ で，観測される最も重い電子であることが知られている．

ここでサイクロトロン有効質量と電子比熱係数 γ の関係を求めてみよう． γ の表式は

$$\gamma = \frac{\pi^2}{3} k_B^2 D(E_F) \quad (6)$$

と，状態密度 $D(E_F)$ で表される．フェルミ面が球状であれば E_F は(1)式を使って

$$\gamma = \frac{\pi^2}{3} k_B^2 \cdot \frac{V}{2\pi^2} \left(\frac{2m_c^*}{\hbar^2} \right)^{3/2} E_F^{1/2} \\ = \frac{k_B^2 V}{3\hbar^2} \cdot m_c^* \cdot k_F \quad (7)$$

と表すことができる．ここで V はモル体積である． k_F は(4)式から $k_F = (S/\pi)^{1/2}$ で求めること

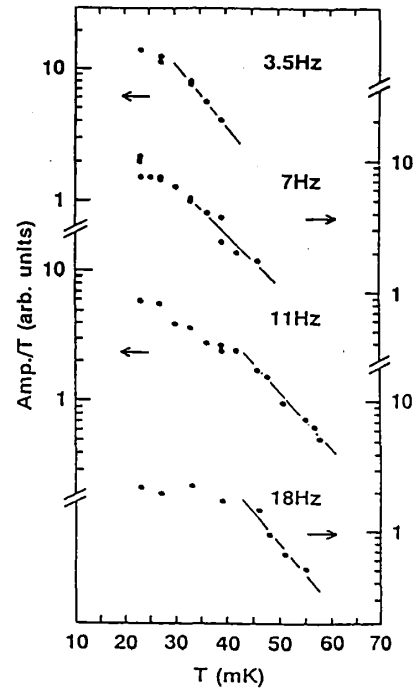


図13 CeRu_2Si_2 の ψ ブランチのサイクロトロン有効質量決定の例[16]（図中に変調磁場の周波数が書いてある．周波数が高いほど発熱の効果は大きい）

ができるから

$$\begin{aligned}\gamma &= \frac{k_B^2 m_0}{3\hbar^2} \left(\frac{2e}{\hbar c} \right)^{\frac{1}{2}} \cdot V \frac{m_c^*}{m_0} F^{\frac{1}{2}} \\ &= 2.87 \times 10^{-6} [\text{mJ/K}^2 \text{mol} \cdot (\text{cm}^3/\text{mol}) \cdot \text{Oe}] \times V \frac{m_c^*}{m_0} F^{\frac{1}{2}}\end{aligned}\quad (8)$$

が得られる。フェルミ面が円柱状であれば

$$\begin{aligned}\gamma &= \frac{\pi^2}{3} k_B^2 \cdot \frac{V}{2\pi^2 \hbar^2} \cdot m_c^* \cdot k_z \\ &= \frac{k_B^2 V}{6\hbar^2} \cdot m_c^* \cdot k_z\end{aligned}\quad (9)$$

のようになる。なお k_z は円柱の軸方向のフェルミ波数で、 m_c^* も磁場が軸方向にかかっているときのものを用いる。通常はフェルミ面を球状（楕円体）あるいは円柱状に近似して γ の値を見積もる。正確に求めるには各磁場方向での k_F 、サイクロトロン有効質量を決定して、積分により状態密度 $D(E_F)$ を求めなければならないが現実的ではない。以上のようによつてすべてのフェルミ面について求めた γ を足しあわせれば dHvA 効果から電子比熱係数を見積もることができる。

一方、バンド計算からもサイクロトロン有効質量 m_b^* を求めることができる。このときはサイクロトロン有効質量の定義式より

$$\begin{aligned}m_b^* &= \frac{\hbar^2}{2\pi} \frac{\partial S(k_H)}{\partial E} \Big|_{E_F} \\ &= \frac{\hbar^2}{2\pi} \frac{S(E_F + \Delta E) - S(E_F - \Delta E)}{2\Delta E}\end{aligned}\quad (10)$$

といった式で計算される[14]。 $S(E_F \pm \Delta E)$ はそれぞれエネルギー ΔE だけ増減させたときのフェルミ面の極値断面積である。もちろんバンド計算から電子比熱係数 γ_b を直接求めることもできる。例として表2に CeSn_3 について dHvA 効果で求めた m_c^* とバンド計算から求めた m_b^* を示しておく。

表2 CeSn_3 のサイクロトロン有効質量[14]

Mass	a			b (100)	c (110)	d (111)	e	f	g (110)
	(100)	(110)	(111)						
$m_c^*(m_0)$		4.15	3.83	2.72	6.30	6.25			4.07
$m_b(m_0)$	2.1	1.7	0.9	1.7	2.3	2.3	3.6	1.4	2.1
m_c^*/m_b		2.4	4.3	1.6	2.7	2.7			1.9

一般に実験から求めたサイクロトロン有効質量はいわゆるバンド有効質量と異なり、サイクロトロン有効質量のほうがバンド理論で求められたバンド有効質量よりも大きい。特に強相関係では両者の違いが著しい。この違いはバンド計算では考慮しにくい多体効果

などの相互作用が主な理由である。サイクロトロン有効質量 m_c^* はバンド有効質量 m_b^* と

$$m_c^* = (1 + \lambda) m_b^* \quad (11)$$

という関係で結ばれる。この λ は質量増強因子と呼ばれその起源は主に、

$$\lambda = \lambda_{e-p} + \lambda_{e-e} + \lambda_m \quad (12)$$

というように、電子-格子相互作用 λ_{e-p} 、電子-電子相互作用 λ_{e-e} と磁氣的相互作用 λ_m に分けることができる。 λ_{e-p} の値が大きくなると格子不安定性を引き起こすので、通常この値は1以下である。重い電子系の場合 λ_{e-e} あるいは λ_m が大きい値を取る。CeSn₃では表2から m_c^* と m_b^* との比は1.9~4.3の間をとる。バンド計算から求めた $\gamma_b = 15.4 \text{ mJ/K}^2 \text{ mol}$ と比熱から求めた $\gamma = 53 \text{ mJ/K}^2 \text{ mol}$ との比3.4という値と比較すると、これらの結果は矛盾しない。

3.3 ディングル温度

サイクロトロン運動をする伝導電子の散乱機構は、ディングル温度 T_D といういわば散乱によるランダウ準位のぼけとしてとらえることができる。dHvA効果を用いればディングル温度を各フェルミ面、磁場方向に対して決定することができるので散乱の機構を解明する上でより細かい情報を与えることができる。さて、このディングル温度は振幅の磁場依存性から求めることができる。具体的にはサイクロトロン有効質量の時と同じ様に(3.b)と(3.d)式から $\log(AH^{1/2})$ を磁場の逆数($1/H$)に対してプロットすればその傾きからディングル温度が求められることがわかる。ただしこのとき m_c^* はすでに求められているとする。

ディングル温度決定の例としてUPt₃を取りあげよう[17]。図14に示してあるのは磁場を[1120]方向にかけた時のディングルプロットである。黒丸と星印はそれぞれ α ブランチと ω ブランチで、サイクロトロン有効質量は25, 90 m_0 である。直線の傾きから求めたディングル温度は α ブランチが70mK、 ω ブランチが30mKである。通常dHvA効果が測定できる試料は0.1から1Kのオーダーであることから考えると、この値は試料が極めてよいということを物語っている。

ディングル温度が求まると、 m_c^* と F を使って伝導電子の平均自由行程 l を見積もることができる。つまり有効質量と散乱緩和時間の定義

$$\hbar k_F = m^* v_F \quad (13)$$

$$l = v_F \tau \quad (14)$$

から、(5)式を使って

$$l = \frac{\hbar^2 k_F}{2\pi k_B m_c^* T_D} \quad (15)$$

が得られる。極値断面積が円で近似できれば(4)式から直ちに

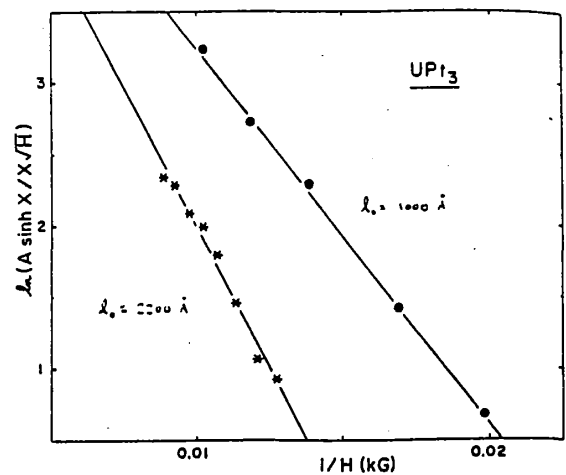


図14 UPt₃のディングル温度決定の例[17]

$$l = \frac{\hbar^2}{2\pi k_B m_0} \left(\frac{2e}{\hbar c} \right)^{\frac{1}{2}} \cdot F^{\frac{1}{2}} \left(\frac{m_c^*}{m_0} \right)^{-1} T_D^{-1} \quad (16)$$

$$= 0.776 [\text{\AA} \cdot \text{Oe}^{-1/2} \cdot \text{K}] \cdot F^{\frac{1}{2}} \left(\frac{m_c^*}{m_0} \right)^{-1} T_D^{-1}$$

が得られる。さきほどのUPt₃の例では平均自由行程 l はそれぞれ1000, 2200 Åと求まっている。

式(15)をみると、たとえば球状のフェルミ面で平均自由行程に異方性がなければ m_c^* と T_D との積は一定となることがわかる。CeIn₃のdブランチは球状のフェルミ面であるにも関わらず、 m_c^* が $2.4m_0$ から $12m_0$ まで変化する。このとき T_D は0.19Kから0.04Kに変化し、 $m_c^* T_D$ は一定であることが見いだされた[18]。このことは、 T_D が τ に逆比例することに注意すると、電子の有効質量が増強されると結晶中の伝導電子がゆっくり動くという描像に実験的な根拠を与えたという意味で意義深い。

今述べたCeIn₃の例はやや特殊であるが、ディンクル温度は単に試料の純良性の比較だけではなく、ディンクル温度の磁場方向依存性を調べることによって散乱の異方性を明らかにしたり、バンド計算と比較することによってs, p, d, fのうちどの成分が散乱に対して影響を受けやすいかを調べることができる。サイクロトロン有効質量もそうであるが、dHvA効果の最大のセールスポイントは、これら重要な物理量を”各フェルミ面”について”様々な方向”に対し”正確に”求めることができることである。

3.4 g因子

式(14)から明らかなように有効質量が $(1+\lambda)$ だけ増強されるとディンクル温度も $(1+\lambda)$ だけ増強される。すなわち、多体効果は有効質量だけでなくディンクル温度にも反映される。そして多体効果はこれから述べるg因子にも反映されると考えられる。つまり自由電子のg因子は約2であるが、結晶中ではスピン軌道相互作用、電子-電子、電子-格子相互作用などによって2からずれる。ゼーマンエネルギーが $g\mu_B H$ で表されることからg因子は電子の磁石らしさを表していると考えられる。したがってg因子はサイクロトロン有効質量、ディンクル温度とともに重要な物理量である。g因子をdHvA効果から求めるにはいくつかの方法が考案されており、適宜それらを選択、あるいは組み合わせ、応用して決定する。

サイクロトロン有効質量が角度変化するとスピン項 R_S は変化し振幅はcos関数的に変化する。特に先程述べたCeIn₃では有効質量が5倍も変化することから R_D 減衰項に加え、 R_S 振動項がはつき

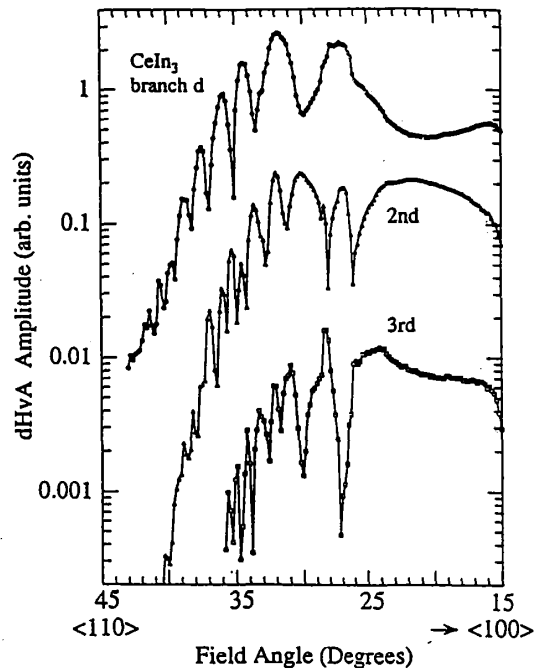


図15 CeIn₃のdブランチ振幅の角度変化
<100>から<110>にむかって有効質量
は5倍になる[19]

り見えている[19]. dHvA振動の基本波 ($r=1$) と倍高長波 ($r=2$) の振幅比をとると

$$\frac{A_2}{A_1} = \frac{1}{2^{3/2}} \frac{(R_T R_D R_s)_{r=2}}{(R_T R_D R_s)_{r=1}} \quad (17)$$

であるから m_c^* と T_D がわかっていれば g 因子が求められる. しかし R_S は周期関数であるから

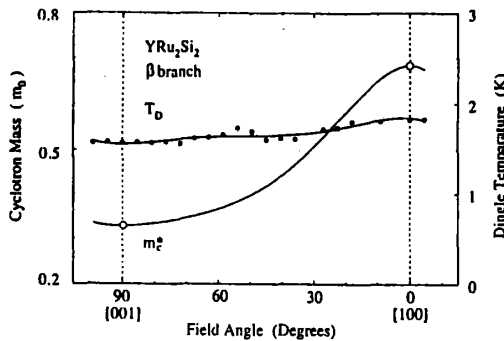


図16(a) YRu₂Si₂のサイクロトロン有効質量とティンクル温度の角度変化[20]

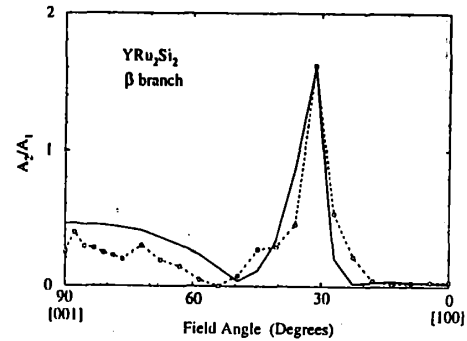


図16(b) β ブランチの振幅比の角度変化 (実線はフィッティング曲線, 破線は実験値) [20]

g は一義的には決まらない. ここで振幅比の角度変化から g 因子を決定した例として YRu₂Si₂を挙げよう[20]. つまり YRu₂Si₂の β ブランチは楕円体フェルミ面の軌道で, サイクロトロン有効質量は極値断面積に比例しているとみなすことができたことから, [100]方向と[001]方向の間の角度範囲の m_c^* と T_D はすべてわかることになり (図16(a)), 振幅比の角度変化を再現する g 因子を6.2と割り出した (図16(b)).

今述べた方法以外の方法については文献[2]を参照されたい. ここで挙げた例は極めてうまくいった例で, いずれの方法も条件がそろわない限り一義的に g 因子を決定することは難しく, 常に決定できる性格のものではないことに注意しなければならない.

4 最近の研究例

上に述べた例をはじめとして, 多くの4f電子系についてはおおむねフェルミ面をうまく説明できる. しかし現状のバンド計算とdHvAの結果が一致しない例も数多く残されているのも事実である. ここでは最近の話題をいくつか取り上げることにする.

4.1 メタ磁性

メタ磁性には反強磁性体に見られるスピントロップによるもの, 遷移金属に見られる様な状態密度の急激な変化によるものなどが知られている. また, 最近では四重極モーメントが絡んだメタ磁性も見いだされている[21]. これら発現機構の異なるメタ磁性の理解にdHvA効果は威力を発揮する. つまりdHvA効果は磁場中でのフェルミ面を観測することから, メタ磁性を起こす物質について, メタ磁性の起こる前後でフェルミ面がどうなっ

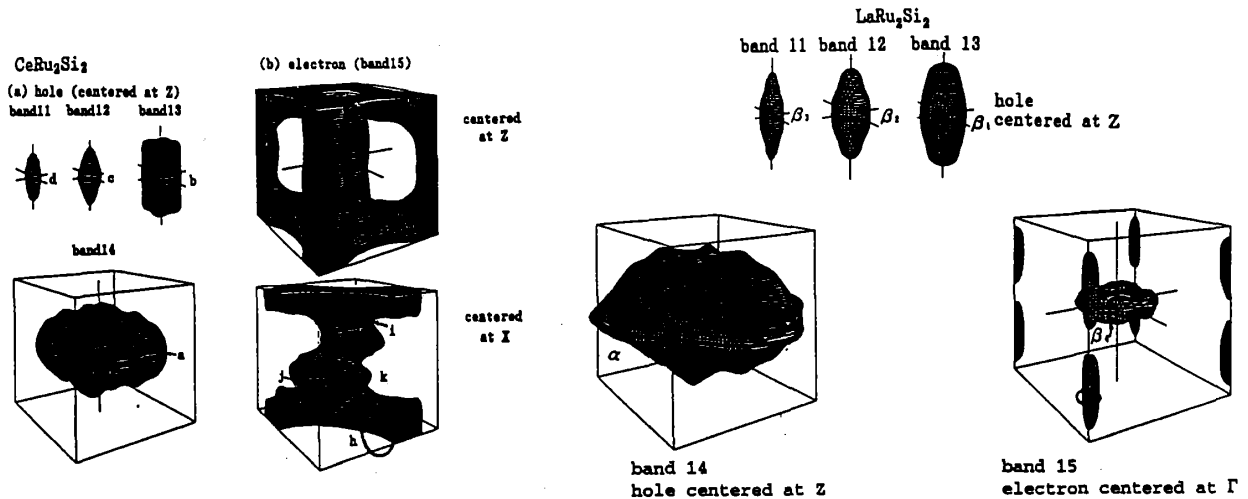


図17 CeRu_2Si_2 と LaRu_2Si_2 のフェルミ面[22]

いるかを調べることができる。メタ磁性を起こす物質で代表的な CeRu_2Si_2 について解説する。

CeRu_2Si_2 はおよそ8Tでメタ磁性転移を起こすが、メタ磁性前後におけるf電子の状態は興味深い。メタ磁性転移前は図17のf電子が遍歴としたバンド計算によっておおむね説明できるとされている[22]。一方転移後のフェルミ面はむしろf電子のない LaRu_2Si_2 に類似している。両者のフェルミ面を比較すると第14バンドの巨大ホール面は CeRu_2Si_2 よりも LaRu_2Si_2 の方が大きく、逆に電子面は CeRu_2Si_2 の方が大きい。つまり実験事実、メタ磁性によって電子のキャリア数が減り、ホールのキャリア数が増えていることを示している。また、メタ磁性前では電子面とホール面の体積が等しい（電子のキャリア数＝ホールのキャリア数）が、転移後はホール面の体積の方が大きく（電子のキャリア数＜ホールのキャリア数）なっているといってもよい。つまりフェルミ面をみる限り、メタ磁性によって伝導電子に寄与する電子の数は減少しており、それまで遍歴的に振る舞っていた4f電子が局在電子に移行していると解釈することができる。

CeRu_2Si_2 において、メタ磁性転移に関する問題は重い電子系を記述する理論の本質的な問題に関わっているため、メタ磁性でのフェルミ面解析はより一層重要であると思われる。

メタ磁性によってフェルミ面が大きく変貌するばあい、その過程をdHvA効果で精密にとらえるのは難しい。これはdHvA効果は振動周波数からそのフェルミ面の大きさを決定することに起因している。周波数の解析にはフーリエ変換（高速フーリエ変換、FFT）を用いるのが一般的だが、それにはある程度の磁場区間での測定が必要になる。したがって磁場によってフェルミ面の形が変化してしまうと周波数が測定磁場範囲で変化してしまうため正確な解析が行えなくなってしまう。現在のところ図18に示すごとくメタ磁性転移付近で連続的に変化することはわかっている[23]が、メタ磁性の起こる極限での振る舞いはまだわかっていない。

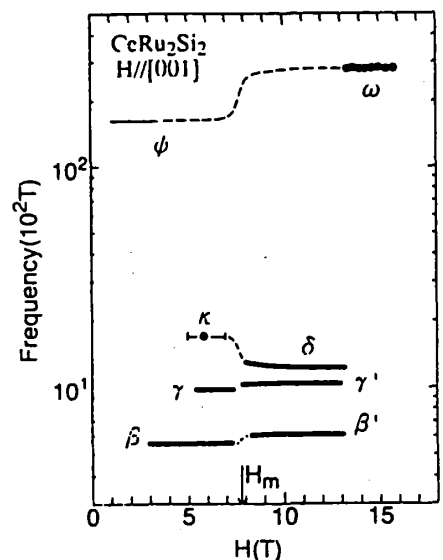


図18 メタ磁性転移付近のdHvA周波数の磁場変化（破線はガイドライン）[23]

しかも転移前後でのサイクロトロン有効質量の振る舞いも上向きスピンと下向きスピンの違うなど、複雑である。

4.2 5f電子系

今述べたメタ磁性を起こす重い電子系物質で UPt_3 、 UPd_2Al_3 や URu_2Si_2 がある。これらはいずれも磁気秩序をおこし、なおかつ超伝導に転移する。とくに UPt_3 はs波以外の超伝導機構が実現しているとして盛んに研究されている。s波でないということはf電子が超伝導に関わっていることを示唆しているが、フェルミ面の研究からはf電子が遍歴しているという確証は得られていないのが現状である。 UPt_3 に限らず磁気秩序を示す5f電子系のほとんどはf電子が遍歴としたバンドモデルあるいは局在モデルで説明できていない。ここでは現在我々が取り組んでいる六方晶の UPt_3 について少し詳しくみてみよう[24]。

5f電子を遍歴とするバンド計算から予想されるフェルミ面を図19に示す。3つの球状あるいは $[0001]$ 方向にのびた回転楕円体の電子面が予想されている。本来このようなフェルミ面は全角度範囲、とりわけ $[0001]$ 方向でdHvA振動が観測されやすいはずであるが、図20にあるように $[0001]$ 方向ではわずかに2つのブランチが狭い角度範囲で見えているだけである。一番大きな電子面の第37バンドを回る軌道は、大きさからいって ω ブランチに対応すると思われるが $[11\bar{2}0]$ 方向のまわりでしかdHvA信号は観測されていない。これらは今のところ曲率因子が原因であると考えている。第37バンドで考えると、 $[11\bar{2}0]$ 方向にのびたフェルミ面のコブがもっととがっているとすると $[0001]$ 及び $[10\bar{1}0]$ で信号が検出されにくいことになる。他の電子面に関しても同様の議論によって理解することができる。しかしホール面では、フェルミ面の大きさという点からみると、複雑な形状をしたホール面のアーム部分の α ブランチがよい一致を示している以外

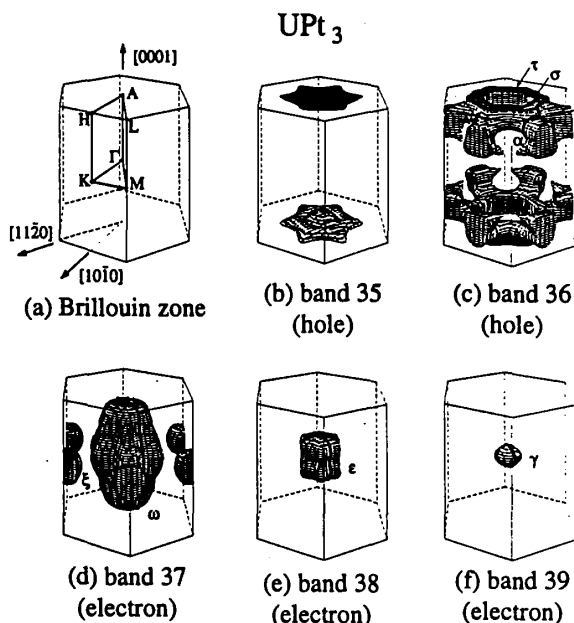


図19 UPt_3 のフェルミ面予想図 (FLAPWによる計算) [24]

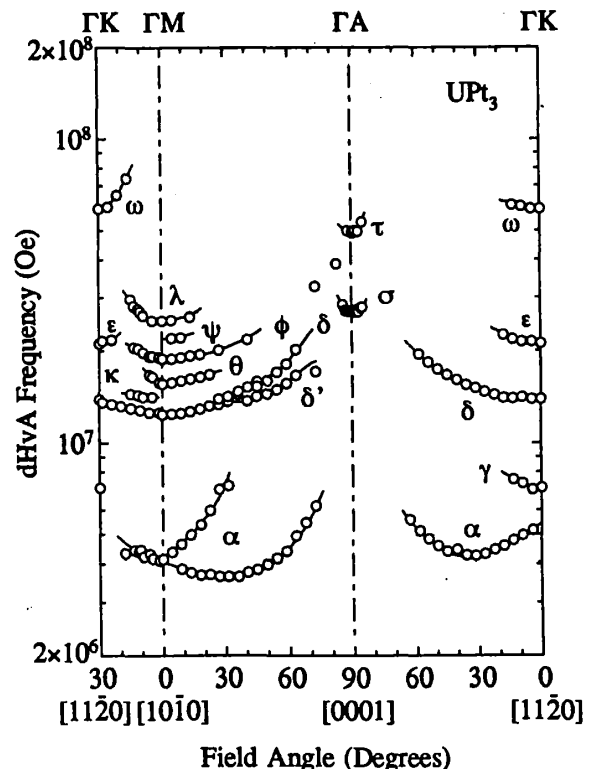


図20 UPt_3 のdHvA振動数の角度依存性[24]

は、いずれも問題がある。このようにバンド計算が実験をうまく説明できないのは、5f電子が4f電子と違って5f-6d電子のスピン軌道エネルギーが無視できないほど大きく、バンド計算の誤差の原因となっているためであると考えられる[15]。またdHvA効果も、すべてのフェルミ面をとらえているとはいいがたく、さらに試料の純良化をつきすすめていく必要がある。

[0001]方向にdHvA振動が検出されにくい原因としてもう一つ散乱の異方性が考えられる。つまり[0001]方向に磁場をかけるのと[0001]面内(c面内)に磁場をかけるときでは[0001]方向に磁場をかけたときの方が散乱を受けやすい(ディンクル温度が高い)と考えるわけである。もしそうだとすればc面内の反強磁性的相関が伝導電子の散乱に大きく寄与している可能性が高い。残念ながら現在のところ[0001]方向のdHvA信号は検出される磁場範囲が狭いので、ディンクル温度の決定にはいたっていない。これも今後の課題であろう。

4.3 超伝導混合状態におけるdHvA効果

超伝導においてフェルミ面がどのようなになるかというのは非常に興味のある問題である(正確には超伝導を担う伝導電子にはフェルミ面が定義されないで、 $H_{c1} < H < H_{c2}$ の混合状態におけるフェルミ面と言うことになる)。混合状態におけるフェルミ面をdHvA効果で調べる場合も先に述べたdHvA効果検出の条件が必要となる。特に問題なのは強磁場条件と磁場均一度であろう。つまり、 H_{c2} がdHvA振動が検出される強磁場条件をみたすほど大きい物質でなければならない。混合状態でdHvA振動が検出された物質としてNbSe₂、Nb₃Sn、V₃Siなどが挙げられるがこれらはいずれも H_{c2} が高い物質である。また高温超伝導体のYBa₂Cu₃O₇[25]及びより3次元的なボロカーバイドのYNi₂B₂C[26]でもdHvA振動が検出されたとの報告がある。もう一つの問題として磁場の均一度を挙げたが、これは混合状態の超伝導体内の磁束が均一でないのが問題となる。超伝導体中の磁束は半径が磁場侵入長程度で、三角格子をくんでいる。上に挙げたようなランダウパラメータ κ の大きな典型的Type IIの超伝導の場合、磁場侵入長は大きいため H_{c2} 付近では磁束はほとんど均一と

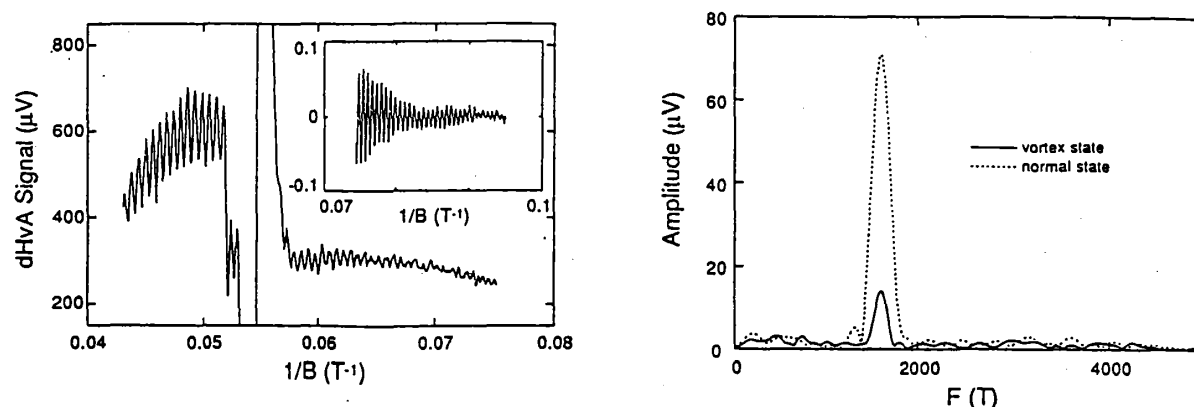


図21 V₃Siの H_{c2} 前後でのdHvA振動の検出[27]
 (a) dHvA振動
 (b) 常伝導状態と超伝導状態のFFTスペクトルの違い

みなされる。

図21(b)のdHvA振動のフーリエスペクトルをみてもわかるように、ほとんどの物質で、混合状態でのdHvA振動数は常伝導体における振動数と変化がないことが報告されている。一方Nb₃Sn, V₃SiなどではdHvA振動の強度に変化が現れ、図21(a)にあるように超伝導になると振動振幅は落ち込む。混合状態で振幅が落ち込むということは、超伝導状態では新たな散乱機構が存在していることを示唆している。今のところ超伝導のオーダーパラメータの空間変化によってフェルミエネルギー付近のランダウ準位が幅を持ち、みかけ上散乱が大きくなっているとするモデルが提案されている[27]。しかしNbSe₂では前者ほどには振動振幅に違いはみられないことから、フェルミ面ごとにH_{c2}が異なっているのではないかともいわれている[28]。いずれにせよdHvA振動が検出されている物質はまだまだ少ないので、今後はCeRu₂やU₆Feなど高いH_{c2}をもつ他の物質のdHvA効果の研究が期待される。特にCeRu₂はFFLOが実現している可能性があることから極めて興味深い研究テーマである。

参考文献

- [1] 田沼静一：固体物理 5 (1969) 327.
- [2] D. Shoenberg: *Magnetic Oscillation in Metals*, Cambridge University Press (1984)
- [3] 小川恵一, 青木晴善：金属物理セミナー 2 (1977) 63 & 125.
- [4] 小川恵一, 青木晴善：固体物理 12 (1977) 377.
- [5] R. Settai, T. Goto, S. Sakatsume, Y. S. Kwon, T. Suzuki and T. Kasuya : *Physica B* 186-188 (1993) 176.
- [6] A. Hasegawa : *J. Phys. Soc. Jpn.* 54 (1985) 677.
- [7] O. Sakai, Y. Kaneta and T. Kasuya : *Jpn. J. Appl. Phys.* 26 (1987) suppl. 26-3, 477.
- [8] I. Umehara, N. Nagai and Y. Ōnuki : *J. Phys. Soc. Jpn.* 60 (1991) 1294.
- [9] I. Umehara, Y. Kurosawa, N. Nagai, M. Kikuchi, K. Sato and Y. Ōnuki : *J. Phys. Soc. Jpn.* 59 (1990) 2848.
- [10] A. Hasegawa and H. Yamagami : *J. Phys. Soc. Jpn.* 60 (1991) 1654.
- [11] A. Hasegawa, H. Yamagami and Johbettoh : *J. Phys. Soc. Jpn.* 59 (1990) 2457.
- [12] 大貫惇睦, 長谷川彰：日本物理学会誌 46 (1991) 571.
- [13] Y. Ōnuki, T. Goto, K. Kasuya : in *Materials Science and Technology*, Vol. 3A, ed. K. H. J. Buschow (VCH, Weinheim, 1991) ch. 7 p. 545.
- [14] Y. Ōnuki and A. Hasegawa : in *Handbook on the Physics And Chemistry of Rare Earth*, Vol. 20, ed. K. A. Gschneidner, Jr. and L. Eyring (Elsevier Science B. V., 1995) ch. 135 p. 1
- [15] 長谷川彰, 大貫惇睦：固体物理 26 (1991) 867.
- [16] H. Aoki, S. Uji, A. K. Albessard and Y. Ōnuki : *J. Phys. Soc. Jpn.* 61 (1992) 3457.
- [17] L. Taillefer, R. Newbury, G. G. Lonzarich, Z. Fisk and J. L. Smith : *J. Magn. Magn. Matt.* 63&64 (1987) 372.
- [18] T. Ebihara, I. Umehara, A. K. Albessard, K. Satoh and Y. Ōnuki : *J. Phys. Soc. Jpn.* 61 (1992) 1472.

- [19] R. Settai, T. Ebihara, M. Takashita, H. Sugawara, N. Kimura, K. Motoki, Y. Ōnuki, S. Uji and H. Aoki : J. Magn. Magn. Matt. 140-144 (1995) 1153.
- [20] H. Ikezawa, R. Settai, M. Takashita, N. Kimura, T. Ebihara, H. Sugawara, K. Motoki, Y. Ōnuki, T. Fukuhara and K. Maezawa : to be published
- [21] Y. Ōnuki, R. Settai and H. Aoki : to be published
- [22] H. Yamagami and A. Hasegawa : J. Phys. Soc. Jpn. 61 (1992) 2388.
- [23] H. Aoki, S. Uji, A. K. Albessard and Y. Ōnuki : Phys. Rev. Lett. 71 (1993) 2110.
- [24] N. Kimura, R. Settai, Y. Ōnuki, H. Toshima, E. Yamamoto, K. Maezawa, H. Aoki and H. Harima : to be published
- [25] G. Kido, H. Katayama-Yoshida and T. Takahashi : J. Phys. Chem. Solids 53 (1992) 1555.
- [26] T. Terashima, H. Takeya, S. Uji, K. Kadowaki and H. Aoki : Submitted to Solid State Commun.
- [27] R. Corcoran, N. Harrison, C. J. Haworth, S. M. Hayden, P. Meeson, M. Springford and P. J. van der Wel : Physica B 206&207 (1995) 534.
- [28] 大貫惇睦 : 固体物理 26 (1991) 411.